

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 544 618**

51 Int. Cl.:

G21F 9/28 (2006.01)

G21F 9/30 (2006.01)

G21F 9/02 (2006.01)

G21B 1/11 (2006.01)

G21F 9/00 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **23.04.2012 E 12724680 (9)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **06.05.2015 EP 2700078**

54 Título: **Aparato y procedimiento para la separación de tritio**

30 Prioridad:

21.04.2011 FR 1153468

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:

02.09.2015

73 Titular/es:

**COMMISSARIAT À L'ÉNERGIE ATOMIQUE ET
AUX ÉNERGIES ALTERNATIVES (100.0%)
25, rue Leblanc, Bâtiment "Le Ponant D"
75015 Paris, FR**

72 Inventor/es:

**GHIRELLI, NICOLAS;
TRABUC, PIERRE;
GASTALDI, OLIVIER;
LEJAY, PASCAL;
BALAY, JOËL y
HADJ-AZZEM, ABDELLALI**

74 Agente/Representante:

VALLEJO LÓPEZ, Juan Pedro

ES 2 544 618 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín europeo de patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre concesión de Patentes Europeas).

DESCRIPCIÓN

Aparato y procedimiento para la separación de tritio

5 La presente invención se refiere a un dispositivo y a un procedimiento para la separación de tritio. La presente invención se refiere en particular a un dispositivo y a un procedimiento para la separación de tritio mediante creación de burbujas en residuos radiactivos metálicos fusibles.

10 La separación de tritio es un tratamiento térmico y/o químico que tiene por objetivo extraer el tritio atrapado en la matriz de residuos radiactivos, en particular residuos radiactivos metálicos fusibles. Los residuos radiactivos potencialmente destinados a sufrir una separación del tritio son aquellos procedentes de instalaciones nucleares que utilizan el tritio.

15 La separación del tritio de los residuos radiactivos metálicos fusibles reduce grandemente su radiactividad, permitiendo de ese modo simplificar su almacenamiento posterior, en particular a causa de la disminución significativa de las exigencias en términos de protección del ambiente y de las personas.

20 Los procedimientos de separación del tritio de la técnica anterior producen sin embargo grandes cantidades de agua fuertemente tritiada (HTO) cuya gestión es compleja.

Un objetivo de la presente invención es por lo tanto proponer un procedimiento y un dispositivo avanzado de separación de tritio que permita reducir grandemente, incluso evitar totalmente, la producción de agua tritiada como resultado de este procedimiento.

25 Este objetivo se alcanza en particular mediante un dispositivo de separación de tritio que comprende:

i) un horno para la fusión de los residuos tritiados que comprende:

- 30 - un crisol para recibir los residuos tritiados y;
- un dispositivo de burbujeo para introducir un gas de burbujeo hidrogenado en el crisol en el curso de la fusión y del tratamiento de los residuos tritiados en el horno; y

35 ii) un reactor catalítico de membrana cuadripolar para el tratamiento de los gases procedentes de la fusión y el tratamiento de los residuos tritiados en el horno, que comprende una membrana para separar dos flujos de gas, siendo permeable la membrana a los isótopos del hidrógeno.

Este objetivo se consiguen igualmente mediante un procedimiento de separación de tritio que comprende las etapas de:

- 40 - carga de un horno de crisol con un lote de residuos tritiados;
- calentamiento del horno para fundir los residuos tritiados en el crisol;
- 45 - burbujeo de los residuos tritiados en fusión mediante la introducción de un gas de burbujeo hidrogenado en el crisol;
- circulación de un gas vector entre el horno y un reactor catalítico de membrana (preferiblemente cuadripolar) para el arrastre de los gases tritiados producidos durante la fusión y el tratamiento de los residuos tritiados, y el
- 50 tratamiento de los gases tritiados que comprende un intercambio de isótopos a través de la membrana del reactor catalítico de membrana.

Como resultado de este intercambio de isótopos, se obtienen unos isótopos del hidrógeno, reduciendo grandemente, e incluso evitando totalmente, la producción de agua tritiada como resultado del procedimiento de separación de tritio de la invención.

La combinación de horno de crisol y del reactor de membrana permite la realización de un procedimiento de separación de tritio eficaz que no produce prácticamente ninguna agua tritiada como resultado del procedimiento. En efecto, la fusión y el burbujeo de los residuos en el crisol permite una evacuación eficaz y prácticamente completa del tritio bajo forma gaseosa, y los gases así cargados son tratados inmediatamente en un reactor de membrana que permite la recuperación del tritio igualmente bajo la forma de una mezcla de gases, que es más simple de tratar a continuación y/o de almacenar que el agua tritiada.

La presente invención se comprenderá mejor con la lectura de la descripción que sigue, ilustrada por las figuras, en las que:

- la figura 1 es un esquema de principio que ilustra el procedimiento de separación de tritio según una forma de realización preferente de la invención,
- la figura 2 es un detalle de un crisol frío según una forma de realización de la invención,
- la figura 3 ilustra el crisol frío de la figura 2 con una parte del dispositivo de refrigeración del crisol,
- la figura 4 es un esquema de principio del reactor catalítico de membrana según la invención.

5

10 Con referencia a la figura 1, el dispositivo de separación de tritio según una versión preferente de la invención comprende un horno 1 para hacer fundir los residuos radiactivos, y un reactor de membrana 2 adecuado para tratar los gases tritiados procedentes de la fusión y del tratamiento de los residuos. El horno 1 es por ejemplo un horno de inducción de crisol frío descrito más en detalle en el presente documento a continuación, encontrándose el crisol frío en el horno 1 y estando destinado a recibir los residuos tritiados a tratar, por ejemplo unos residuos radiactivos metálicos fusiles. La temperatura a alcanzar en el seno del horno es como mínimo la temperatura de fusión de los

15 residuos a separar el tritio, que está comprendida generalmente entre 1000 °C y 1600 °C.

Una forma de realización del crisol 10 se ilustra a título de ejemplo no limitativo en la figura 2, en la que el crisol 10 es un material magnético y segmentado para minimizar las corrientes inducidas en el crisol 10 durante el calentamiento del horno 1.

20

Por ejemplo, según esta forma de realización, el crisol 10 es un crisol cilíndrico segmentado de cobre. Los segmentos 100 están ligeramente separados unos de los otros sobre lo esencial de su periferia, y unidos entre sí por ejemplo únicamente alrededor del centro del fondo del crisol 10. La división del crisol 10 en segmentos 100 distintos y separados entre sí permite minimizar, incluso evitar totalmente, la formación de corrientes inducidas en el material del crisol durante la activación del horno de inducción, evitando de ese modo un calentamiento indeseable del crisol 10.

25

Se pueden concebir sin embargo otros materiales y/o formas en el marco de la invención para el crisol del horno de inducción. Según una forma de realización alternativa, el crisol está formado por ejemplo por una única pieza no segmentada de un material no magnético.

30

El crisol 10 comprende preferentemente una boquilla 102, por ejemplo en su fondo, para la introducción de un gas de burbujeo de hidrógeno en el crisol 10 y en consecuencia en la masa de los residuos en fusión en el curso de su tratamiento. La boquilla 102 está unida por medio de un conducto no representado a una fuente no representada del gas de burbujeo de hidrógeno, por ejemplo un depósito de gas, dispuesto preferentemente en el exterior del horno.

35

El gas de burbujeo de hidrógeno está compuesto de un gas químicamente inerte (por ejemplo argón, helio,...) al que se añade hidrógeno (H₂). Presenta por ejemplo la composición volumétrica siguiente: Ar + 1 a 10 % de H₂. Preferentemente Ar + 2 a 4 % de H₂.

40

Según una forma de realización alternativa, el crisol comprende varias conducciones de introducción del gas de burbujeo de hidrógeno para un reparto uniforme del gas de burbujeo de hidrógeno en la masa de los residuos en fusión. Según una variante de la invención, el gas de burbujeo de hidrógeno se introduce en la masa de los residuos en función mediante uno o varios tubos introducidos en el crisol 10 por su abertura superior y sumergidos en la masa de los residuos en fusión.

45

El crisol 10 es por ejemplo un crisol frío, es decir que el dispositivo de separación de tritio comprende además un dispositivo de refrigeración para refrigerar el crisol 10. El crisol 10 se mantiene activamente en consecuencia, con la ayuda de un dispositivo de refrigeración, a una temperatura sustancialmente inferior a la temperatura de los residuos en fusión que contiene. Esto permite principalmente preservar mejor la integridad estructural del crisol frío durante el calentamiento del horno en el transcurso de la que se pueda alcanzar una temperatura comprendida entre 1000 °C y 1600 °C.

50

El crisol frío permite igualmente una reducción de la contaminación del crisol por los residuos tritiados, un desmoldado después de la fusión de los residuos tratados que es más fácil, así como un mejor control de los flujos de tritio disminuyendo su pérdida eventual de otro modo que por las válvulas de escape previstas.

55

El dispositivo de refrigeración para la refrigeración del crisol 10 comprende por ejemplo unos canales 101 formados en las paredes del crisol 10 y que permiten la circulación de un fluido caloportador, por ejemplo un gas o un líquido de refrigeración, en el interior de las paredes del crisol 10. Como se ha ilustrado en la figura 2, cada segmento 100 se refrigera preferentemente de modo individual y comprende así, por ejemplo, un canal 101 para la circulación del fluido caloportador.

60

65

- Con referencia a la figura 3, los canales de refrigeración en el interior de las paredes del crisol 10 están en comunicación con unos conductos 103 que permiten la introducción del fluido caloportador en los canales. Los conductos 103 están alimentados a su vez con fluido caloportador mediante un distribuidor 104 que distribuye el fluido caloportador frío entre los conductos 103 y evacúa el fluido caloportador caliente por ejemplo hacia un intercambiador de calor no representado, dispuesto preferentemente en el exterior del horno, para refrigerarle. Se pueden concebir sin embargo otras configuraciones del dispositivo de refrigeración para la refrigeración del crisol 10 en el marco de la invención.
- El crisol 10 está preferentemente cubierto por un dispositivo térmicamente aislante no representado y, por ejemplo confinado en una vaina de cuarzo 105 que permite la introducción de un gas vector.
- Según una forma de realización preferente de la invención ilustrada esquemáticamente en la figura 4, el reactor catalítico de membrana 2 del dispositivo de separación de tritio es un componente cuadripolar, es decir que comprende dos entradas 23a, 23b y dos salidas 24a, 24b, permitiendo de ese modo la circulación de dos flujos de materia en su seno. El reactor de membrana 2 comprende dos cámaras 21, 22 permitiendo cada una la circulación de un flujo de materia a través del reactor 2. Las dos cámaras 21, 22 están separadas por una membrana 20 que es preferentemente permeable a los isótopos del hidrógeno. La membrana 20 se realiza preferentemente con una aleación de paladio y de plata (Pd/Ag) que permite principalmente catalizar el intercambio de isótopos.
- Una primera cámara 21 del reactor de membrana está integrada en un circuito A, B, C, D, E representado de manera esquemática en la figura 1, que atraviesa igualmente el horno 1 y que comprende preferentemente una bomba 3 para poner en circulación la mezcla de gases en el circuito A, B, C, D, E. La segunda cámara 22 está unida a través de la salida 24b a un sistema de recuperación y/o almacenamiento del tritio.
- El procedimiento de separación de tritio de la invención es por ejemplo un procedimiento de tipo por lotes que comprende una serie de secuencias que se repite para cada serie o lote de residuos trititados tratados.
- En el curso de una secuencia de arranque, los residuos trititados se cargan en el horno 1 del dispositivo de separación de tritio, lo que se ilustra por la flecha 6 en la figura 1, y se disponen en el crisol frío no representado en la figura 1.
- Se introduce un gas vector en el circuito A, B, C, D, E, como se ha ilustrado por las flechas 7 y 8. Eventualmente es de hidrógeno y comprende un gas químicamente inerte (por ejemplo argón, helio,...) y preferentemente menos del 4 % (normalmente entre 0,1 % y 4 %) en volumen de hidrógeno H₂. El gas vector se lleva por ejemplo desde botellas no representadas provistas de descompresores y de válvulas. El flujo de gas vector puede variar en función de las cantidades y de la actividad de los residuos trititados, y de las posibilidades del sistema de captura de los gases trititados aguas abajo.
- La secuencia de arranque es seguida por una secuencia de fusión y de separación del tritio en el curso de la que el horno 1 se calienta con el fin de hacer fundir el lote de residuos trititados. Según una forma de realización, el horno 1 es un horno de inducción y los residuos son unos residuos trititados metálicos que se calientan y funden bajo el efecto del campo magnético generado en el horno 1.
- El crisol en el que se encuentra la masa de los residuos fundidos, o en fusión, se mantiene entonces por ejemplo a una temperatura sustancialmente inferior a la del fundente con la ayuda del dispositivo de refrigeración. La utilización de un crisol frío facilita el desmolde del lingote obtenido después de la fusión.
- Una vez fundidos los residuos, se introduce un gas de burbujeo hidrogenado en el fundente, por ejemplo por la boquilla 102 que se encuentra en el fondo del crisol 10. El gas de burbujeo hidrogenado atraviesa de ese modo el fundente y tiene lugar un intercambio de isótopos entre el gas y los residuos fundidos, de manera que la fase gaseosa se enriquece en tritio.
- Un burbujeo en la parte inferior ofrece varias ventajas, tal como la optimización del diseño posible para una mejor distribución del gas y por tanto un factor de separación de tritio mejorado, así como un confinamiento posible más cerca del gas producido por la separación del tritio.
- El gas vector que se encuentra en el circuito A, B, C, D, E se dispone en circulación en el dispositivo de separación de tritio entre el horno 1 y el reactor catalítico de membrana 2, por ejemplo con la ayuda de la bomba 3, que arrastra de ese modo los gases trititados desde el horno 1 hacia el reactor de membrana 2.
- El flujo del gas trititado procedente del horno 1 entra en la primera cámara 21 por la entrada 23a del reactor de membrana 2, mientras que se introduce un flujo de hidrógeno H₂ en contrasentido por la entrada 23b de la segunda cámara 22.
- Los gases trititados se componen generalmente de una mezcla de gas de fórmula general Q₂ o Q₂O que comprenden el tritio y al menos uno de los isótopos del hidrógeno indicado por "Q" (es decir Q se elige entre H = hidrógeno, D =

deuterio, T = tritio), tal como por ejemplo un gas elegido entre T₂, HT, DT, T₂O, HTO o DTO.

Los gases tritizados están mezclados con el gas vector cuando llegan a la membrana 2.

- 5 Al ser la membrana que separa los flujos, permeable a Q₂, pero no a Q₂O, el intercambio de isótopos que sigue entre los dos flujos se realiza por ejemplo según la fórmula general siguiente:



- 10 es decir por ejemplo: $H_2 + T_2O \leftrightarrow H_2O + T_2$,
o $H_2 + HTO \leftrightarrow H_2O + HT$.

15 De ese modo, el gas que sale de la primera cámara 21 por la salida 24a y que retorna hacia el horno 1 a través de la bomba 3 está esencialmente sin tritio y comprende principalmente el gas vector y el vapor de agua. Los isótopos del hidrógeno se recuperan a la salida 24b de la segunda cámara 22 del reactor de membrana 2, bajo la forma de una mezcla gaseosa (especies reducidas tales como por ejemplo H₂, HT y/o T₂) que se almacenan por ejemplo directamente bajo forma de hidruros o se envían hacia un sistema de purificación.

20 En el transcurso de la secuencia de fusión y de separación del tritio, la presión en el interior del dispositivo de separación de tritio de la invención está controlada preferentemente de manera continua o a intervalos regulares con la ayuda de un manómetro no representado. La presión se mantiene preferentemente a un valor constante y corregido según sea necesario por la adición del gas vector hidrogenado. La concentración de hidrógeno en el gas de burbujeo hidrogenado se mide y regula igualmente mediante la adición de hidrógeno para optimizar el intercambio de isótopos con el fundente y garantizar de ese modo una separación eficaz del tritio de los residuos.

25 Una vez tratado el lote de residuos, la potencia aportada al dispositivo de separación de tritio, en particular al horno 1, se disminuye progresivamente en el transcurso de la secuencia de parada. El circuito A, B, C, D, E se purga a través de una válvula de escape 9 ilustrada esquemáticamente en la figura 1. Los residuos metálicos con el tritio retirado se descargan entonces del horno 1 para su almacenamiento, eliminación o reciclado.

30 Ejemplo de aplicación del procedimiento de separación de tritio según una forma de realización de la invención:

1. Arranque

35 Se identifican las operaciones siguientes durante la fase de arranque:

- Carga de los residuos tritizados en el horno, por ejemplo alrededor de 100 g, cierre del horno, verificación de la estanquidad del dispositivo;
- 40 • Barrido por un gas vector que contiene por ejemplo menos del 4 % en volumen de hidrógeno, o más si la seguridad del procedimiento está demostrada en el sistema. El caudal puede variar en función de las cantidades y de la actividad de los residuos tritizados, y de las posibilidades del sistema de captura de los gases tritizados aguas abajo;
- 45 • Aportación de potencia al sistema de calentamiento hasta la fusión del metal, dependiendo la potencia de la cantidad de los residuos, del tipo de metal, del flujo de barrido y de la eficacia del horno.

2. Fusión y separación de tritio

50 Se identifican las operaciones siguientes durante la operación de separación del tritio.

- Mantenimiento del barrido de gas asegurando un burbujeo en el metal fundido;
- 55 • Control de la presión y mantenimiento de la concentración en hidrógeno constante en el gas de burbujeo hidrogenado, por ejemplo menos del 4 % en volumen, o más si está demostrada la seguridad del procedimiento;
- Recogida de los gases de burbujeo y envío de estos gases al reactor de membrana, circulación en el (los) tubo(s) de este reactor;
- 60 • Barrido de hidrógeno en el lado de la calandra del reactor de membrana con el fin de promover el intercambio de isótopos;
- Recuperación de los isótopos del hidrógeno que se han difundido a través de la membrana;
- 65 • Duración del tratamiento variable según la actividad del tritio, la naturaleza del material y la masa de la muestra.

3. Parada

Se identifican las operaciones siguientes durante la fase de parada:

- 5
- Disminución progresiva de la potencia aportada al sistema, en particular al sistema de calentamiento;
 - Purga a través de la vía de escape al final del tratamiento;
- 10
- Descarga del residuo sin tritio una vez que la temperatura permite la manipulación del residuo solidificado obtenido.

De la descripción anterior surge que el dispositivo y el procedimiento de separación de tritio de la invención presentan principalmente al menos una de las ventajas siguientes:

- 15
- producción reducida e incluso nula de agua tritiada,
 - valorización inmediata del tritio contenido en los residuos,
- 20
- mejora de la eficacia de la separación de tritio: según la naturaleza de los materiales y de la actividad inicial, la relación entre el contenido en tritio inicial y el final puede estar comprendida entre 1000 y más de 10.000.

REIVINDICACIONES

1. Dispositivo de separación de tritio que comprende:
- 5 i) un horno (1) para la fusión de residuos tritiados que comprende:
- un crisol (10) para recibir los residuos tritiados;
 - un dispositivo de burbujeo para introducir un gas de burbujeo hidrogenado en dicho crisol (10) en el curso de la fusión y del tratamiento de los residuos tritiados en dicho horno (1); y
- 10 ii) un reactor catalítico de membrana (2) cuadripolar para el tratamiento de los gases procedentes de la fusión y el tratamiento de los residuos tritiados en el horno (1), que comprende una membrana (20) para separar dos flujos de gas, siendo permeable dicha membrana (20) a los isótopos del hidrógeno.
- 15 2. Dispositivo de separación de tritio según la reivindicación anterior, estando realizada dicha membrana (2) en una aleación de paladio y de plata.
3. Dispositivo de separación de tritio según una de las reivindicaciones anteriores, siendo dicho horno (1) un horno de inducción.
- 20 4. Dispositivo de separación de tritio según la reivindicación anterior, siendo dicho crisol (10) de un material magnético y estando segmentado para minimizar las corrientes inducidas en dicho crisol (10) durante el calentamiento del horno (1).
- 25 5. Dispositivo de separación de tritio según una de las reivindicaciones anteriores, que comprende además un dispositivo de refrigeración para refrigerar dicho crisol (10).
6. Dispositivo de separación de tritio según una de las reivindicaciones anteriores, comprendiendo dicho dispositivo de burbujeo una boquilla (102) en el fondo de dicho crisol (10) para la introducción del gas de burbujeo hidrogenado en dicho crisol (10).
- 30 7. Dispositivo de separación de tritio según una de las reivindicaciones anteriores que comprende además una bomba (3) para la circulación de un gas vector en dicho dispositivo de separación del tritio entre dicho horno (1) y dicho reactor catalítico de membrana (2).
- 35 8. Procedimiento de separación de tritio que comprende las etapas de:
- carga de un horno (1) de crisol (10) con un lote de residuos tritiados;
 - calentamiento del horno (1) para fundir los residuos tritiados en dicho crisol (10);
 - burbujeo de los residuos tritiados en fusión mediante la introducción de un gas de burbujeo hidrogenado en dicho crisol (10);
 - circulación de un gas vector entre el horno (1) y un reactor catalítico de membrana (2) para el arrastre de los gases tritiados producidos durante la fusión y el tratamiento de los residuos tritiados, y el tratamiento de los gases tritiados, que comprende un intercambio de isótopos a través de la membrana (20) de dicho reactor catalítico de membrana (2).
- 40 9. Procedimiento según la reivindicación anterior, que comprende además la introducción de un flujo de hidrógeno H₂ a contrasentido del flujo de los gases tritiados en dicho reactor catalítico de membrana (2) y la recuperación del tritio en fase gaseosa.
- 50 10. Procedimiento según una de las reivindicaciones 8 a 9, que comprende además la evacuación del lote de residuos tratados fuera del horno (1).
- 55 11. Procedimiento según una de las reivindicaciones 8 a 10, que comprende un reactor catalítico de membrana (2) cuadripolar.

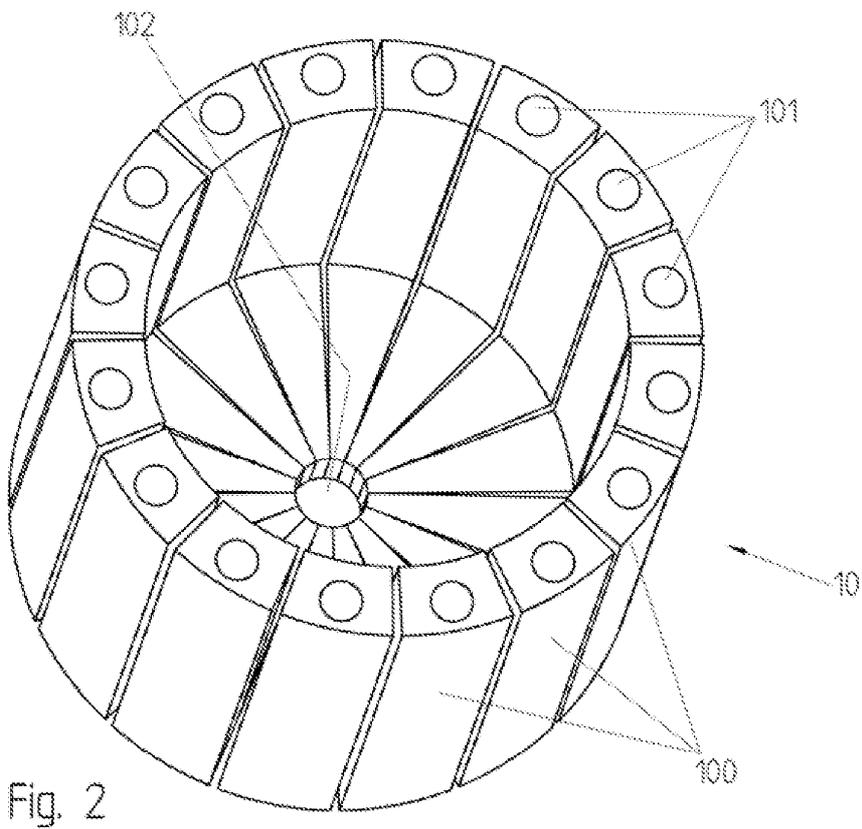
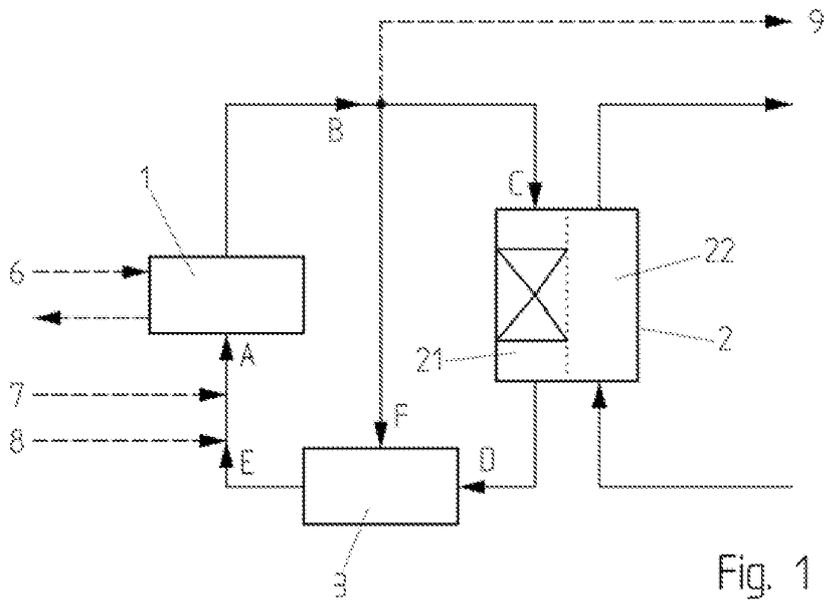


Fig. 3

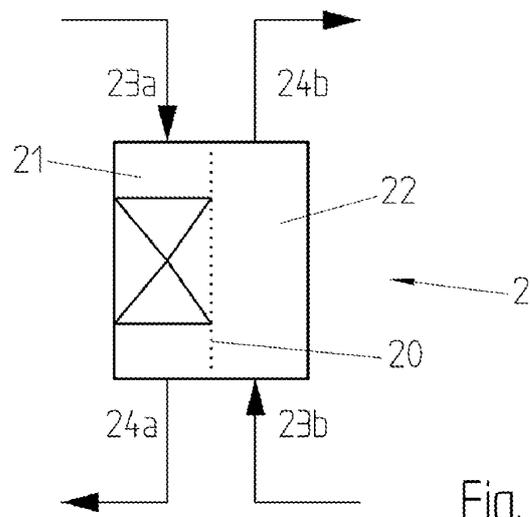
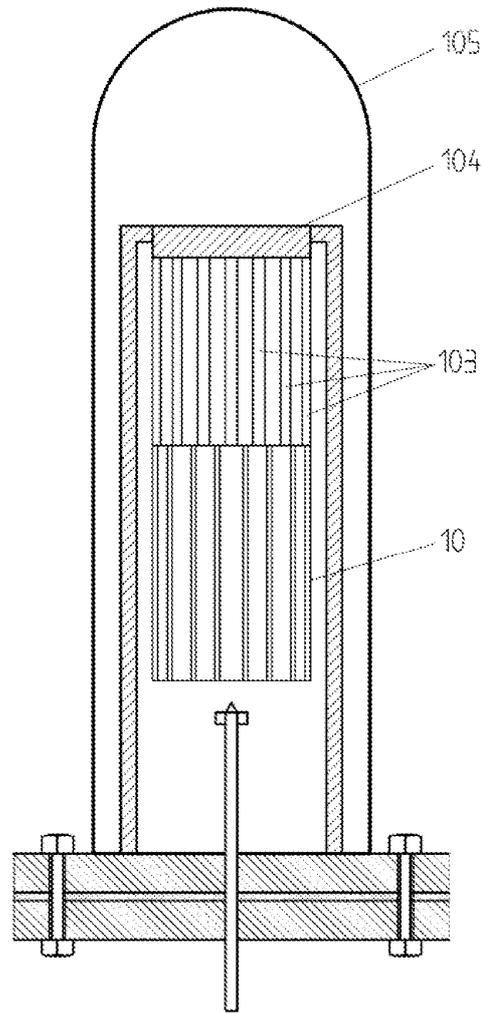


Fig. 4